

진공동결건조의 최적운전을 위한 고찰

이승주

동국대학교 식품공학과

Consideration for the Optimum Operation of Vacuum Freeze Drying

Seung Ju Lee

Department of Food Science and Technology, Dongguk University

Abstract

Vacuum freeze drying is a specialized technology to provide the best qualities of dried materials due to its unique conditions at low temperature and frozen state. The factors that should be considered in the principle basis are heat and mass balance between the materials and the drier, collapse of the materials during drying, and limited boundary of chamber pressure and material temperature. It should be the collapse that finally influences the performance in terms of qualities of dried materials. In this review vacuum freeze drying was analyzed mainly under the point of view of physical properties of the materials; its optimum operation was discussed; new techniques were dealt with. Glass transition and eutectic concepts are critical to the material qualities and applied in connection with the material properties, and heat and mass balance. The dryer operation was discussed in terms of shelf temperature and the material collapse properties. The new techniques to improve the classical vacuum freeze drying were argued, i.e., microwave vacuum freeze drying, fluidized bed atmospheric freeze drying, and spray vacuum freeze drying.

Key words: Vacuum freeze drying, collapse temperature, glass transition, eutectic freezing

서 론

식품이나 화학물질 등의 용매인 물은 건조 조작을 통하여 제거된다. 건조는 일반적인 분류로 상압 건조(열풍건조, 분무건조 등), 진공건조, 진공동결건조 등으로 나뉠 수 있는데, 진공동결건조는 다른 방식과 달리 증발이 아닌 승화를 통하여 물이 건조되는 특징을 갖는다.

승화란 Fig. 1에 나타나 있는 바와 같이 저온 상태에서 진공이 형성되면 고체 얼음이 액체 물의 상태를 거치지 않고 직접 기체인 수증기로 상변화하는 과정을 의미한다. 따라서 진공동결건조는 먼저 피건조물을 동결시킨 후 진공상태에서 이루어진다. 승화와 증발이 피건조물에 미치는 효과의 차이점을

다음과 같이 정리할 수 있다. 승화는 증발에 비하여 낮은 온도에서 일어나므로 열에 대한 피건조물의 안전성(열변성, 향기성분의 보존 등)이 보장될 수 있다. 또한 승화는 고체 상태에서 일어나므로 피건

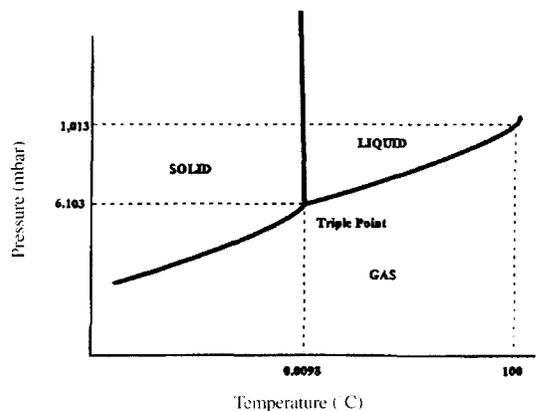


Fig. 1. Phase diagram and triple point of water.

Corresponding author: Seung Ju Lee, Professor, Department of Food Science and Technology, Dongguk University, Seoul 100-715, Korea.
Phone: 02-2260-3372, Fax: 02-2260-3372
E-mail: Lseungju@dongguk.edu

조물의 수축에 의한 물리적 변형(피건조물 원형 유지, 다공성 구조, 밀도, 재수화시 복원성 등)을 방지할 수 있어 특히 다공성 구조의 유지가 필수적인 피건조물에 대한 적합한 건조 방식이라 할 수 있다.

진공동결건조는 크게 1차 건조(승화)와 2차 건조(탈습)의 구간을 거쳐 완성되는데 수분은 주로 1차 건조 구간에서 제거되지만 2차 건조 구간에 따라 건조 시간이 영향을 받을 수도 있다. 또한 다른 방식에 비하여 동결 및 진공 조작이 부가되기 때문에 에너지 및 장치의 구성 측면에서 고비용의 취약점이 지적되고 있다. 진공동결건조 장치의 대략적인 구성을 살펴보면 건조실, 가열판(shelf)의 히터 및 냉동기, 응축기(condenser)의 냉동기, 진공펌프 등으로 구성된다(Fig. 2). 가열판으로부터 열에너지가 공급되며, 건조로부터 발생한 수증기가 응축기에 동결 포집되며, 진공펌프에 의해 건조실이 진공상태로 유지된다.

최근까지 진공동결건조는 공정 차원에서 크게 세 가지 측면으로 개발되어 왔다. 즉, 승화 에너지의 효과적인 전달, 건조시간의 단축, 진공밀폐공간에서의 효과적인 제습 방안이 제시되었다. 마이크로웨이브(microwave)의 열원화, 냉동응축기를 대신한 강력 흡습제의 사용 등 여러 가지의 방법이 연구논문, 특허 등을 통하여 발표되어 왔으나, 여전히 기존의 진공동결건조 방식이 산업적으로 적용되고 있는 점을 감안하여 볼 때 이들 방법들은 실용적인 차원에서 앞으로 수정 및 보완을 통하여 개선되어야 한다.

이상과 같은 진공동결건조는 그 특성에 근거하여 산업적으로 식품, 화공, 목재 등의 분야에서 선별적으로 큰 실효성을 갖고 적용되고 있다. 본 고에서는 진공동결건조의 전달 메커니즘과 피건조물 물성 측면의 고찰, 건조기의 바람직한 운전 방법, 최근 기술 동향 등에 관하여 논하였다.

승화(sublimation) 및 탈습(desorption) 건조

진공동결건조의 전처리 단계인 예비 동결 과정에서 피건조물 내 수분은 얼음으로 상변화 되고 그 외의 고형물은 비동결수와 함께 고화된다. 건조가 시작되면 먼저 얼음이 승화되면서 내부 공극과 통로가 형성된다(Fig. 3). 일종의 기벽 형태인 고형물 부분의 비동결수는 승화가 아닌 내부 수분의 탈습에 의하여 건조된다.

기벽 물질은 일반적으로 약 65% 고형물을 포함한다. 건조전 피건조물이 약 25% 고형물, 건조후 피건조물은 약 97.5% 고형물을 갖는다고 가정한다면, 기벽 물질은 $0.35/0.65=0.538$ kg water/kg solids, 건조후 피건조물은 $0.025/0.975=0.026$ kg water/kg solids 그리고 건조전 피건조물은 $0.75/0.25=3.0$ kg water/kg solids로 환산된다. 따라서 $(3-0.538)/3=82.1\%$ 의 수분이 승화되고 $(0.538-0.026)/3=17.1\%$ 의 수분이 탈습 건조되며, $0.026/3=0.87\%$ 의 수분이 건조후 피건조물에 남게 된다. 만약 건조전 피건조물

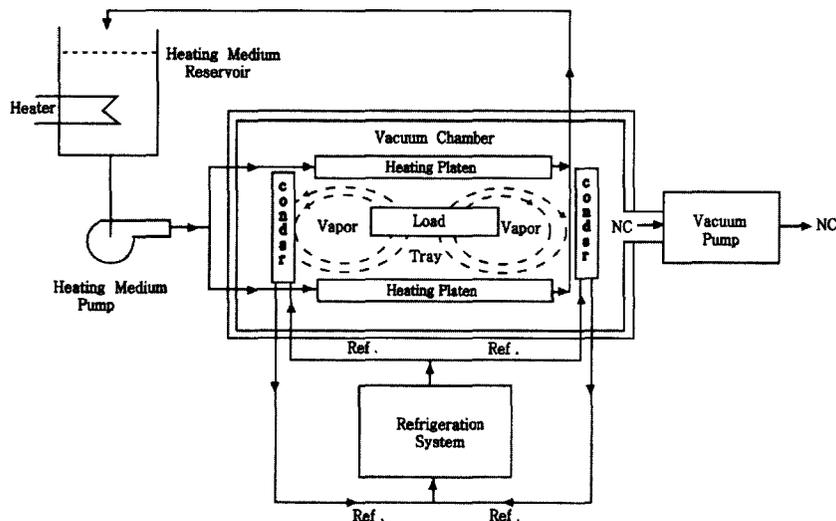


Fig. 2. Basic vacuum freeze dryer system. Ref., refrigerant; NC, noncondensable; Condsr, condenser.



- Concentrate regions (dissolved solids)
- Ice crystals
- Interlinked networks of voids from sublimations of ice crystals

Fig. 3. Segregation of ice and concentrate during freezing of liquid solutions; porous matrix left after removal of ice by sublimation.

이 10% 고형분을 함유한다면 같은 방식으로 계산하여 단지 5.7%의 수분이 탈습 건조되며 94.0%의 수분이 승화됨을 알 수 있다. 비록 상대적으로 작은 수분 양이 탈습 건조 대상일지라도 비교적 긴 건조시간을 요하며(일반 액상시료 건조, 1~2시간), 표피를 갖는 피건조물인 채소류 등은 탈습 건조가 억제되어 더 장시간이 소요된다(2~4시간).

물질 및 열 전달

진공동결건조에서 수분이 승화나 탈습 건조되기 위해서는 상변화 열에너지가 공급되어야 한다. Fig. 4에서와 같이 열원으로부터 열에너지가 피건조물에

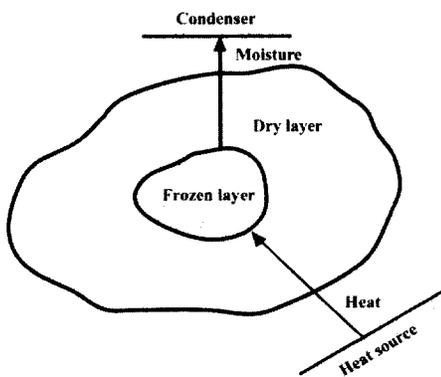


Fig. 4. Schematic representation of mass and heat transfer in vacuum freeze drying.

공급되면 수증기가 발생하여 응축기로 물질 이동된다. 이때 물질 및 열전달은 피건조물의 건조층을 통하기 때문에 상당한 저항을 받게 되는데, 진공동결 건조 장치내 존재할 수 있는 그 밖의 저항 인자는 Fig. 5와 같이 정리된다.

물질 및 열 수지

평판형 피건조물이 상하로부터 복사 열전달을 받아 건조층이 위아래로부터 형성되어 중심부로 전진하는 계를 대상으로 물질 및 열전달 현상을 다루었다. 승화 중 피건조물에 형성되는 건조층 두께를 z 라 하면 수분 이동 속도(G_s)는 식 (1), (2)와 같다.

$$G_s = Kp(Ps_* - Po)/z = Kp(Ps_* - Pc_*)/z \quad (1)$$

$$G_s = \rho \frac{X_o - X_f}{1 + X_o} \frac{dz}{d\theta} \quad (2)$$

여기서 Ps_* 는 승화면에서 수증기압, Po_* 는 건조층 표면에서 수증기압, Pc_* 는 응축기표면에서 수증기압, Kp 는 건조층의 수증기 투과도, ρ 는 동결부위의 밀도, X_o 는 초기수분함량, X_f 는 최종 수분함량, θ 는 건조진행시간이다. 만약 Ps_* , Pc_* , Kp 가 일정하다고 가정하면 건조완료시간은 식 (3)과 같이 산출된다.

$$\theta_{final} = \frac{\rho[X_o - X_f]}{2Kp[1 + X_o]} \frac{a^2}{[Ps_* - Po]} \quad (3)$$

승화면으로의 열전달은 얼음이 수증기로 승화될

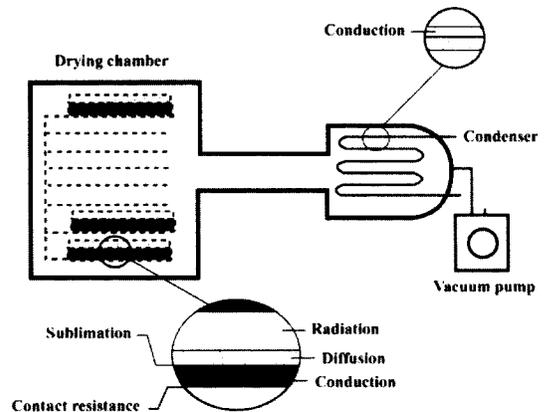


Fig. 5. Schematic representation of resistances to heat and mass transfer in vacuum freeze drying.

때 상변화 에너지로 소모된다. 열 전달 속도(Q_s)는 식 (4)와 같다.

$$Q_s = G_s H_s = K_t \frac{T_o - T_s}{z} \quad (4)$$

여기서 H_s 는 승화잠열, K_t 는 건조층의 열전달 계수, T_o 는 건조층 표면 온도, T_s 는 승화면에서의 온도이다.

역시 T_o , T_s , K_t 가 일정하다면 건조완료시간은 식 (5)와 같다.

$$\theta_{final} = \frac{\rho[X_o - X_f]H_s}{2K_t[1 + X_o]} \frac{a^2}{[T_o - T_s]} \quad (5)$$

만약 $Q_s > G_s H_s$ 일 경우에는 승화에 소모되고 남은 에너지에 의하여 피건조물의 온도는 상승하게 되며, 그 반대로 $Q_s < G_s H_s$ 인 경우는 승화에 필요한 에너지가 부족하여 피건조물의 온도는 하강한다. 따라서 일정한 승화면의 온도를 유지하기 위해서 $Q_s = G_s H_s$ 인 조건을 유지하도록 피건조물 및 건조기 운전 조건을 제어하는 것이 필요하다.

건조층의 수증기 투과도 및 열전달 계수

상기와 같은 평판형 피건조물에 대한 복사 방식의 진공동결건조를 실험하여 K_p 와 K_t 를 측정할 수 있다.

$$K_t = \frac{H_s(\Delta W)}{\Delta\theta(T_o - T_m)} \frac{(2W_o - W_1 - W_2)(1 + X_o)}{8\rho(X_o - X_f)A^2} \quad (6)$$

$$K_p = \frac{\Delta W}{\Delta\theta(P_{s*} - P_{o*})} \frac{(2W_o - W_1 - W_2)(1 + X_o)}{8\rho(X_o - X_f)A^2} \quad (7)$$

여기서 W_o 는 초기 피건조물 무게, T_m 은 피건조물 중심부 온도, $\Delta\theta = \theta_2 - \theta_1$, W_1 은 θ_1 에서 무게, W_2 는 θ_2 에서 무게, A 는 피건조물 평판의 면적이다. 단, 실험조건으로 측정 구간동안에는 T_o , T_m , T_c 를 일정하게 가열판 및 응축기를 제어해야 한다.

진공동결건조를 위한 피건조물의 예비동결 과정 중 특별한 교반이 없을 경우를 제외하고는 전형적인 가지모양의 얼음 구조가 생성되며(Fig. 6), 건조되면서 통로가 형성되어 수증기가 배출될 수 있다. K_p 가 높기 위해서는 배출 통로가 연속적으로 배열되어 있어야 하는데, 만약 잘못된 동결에 의하여 얼

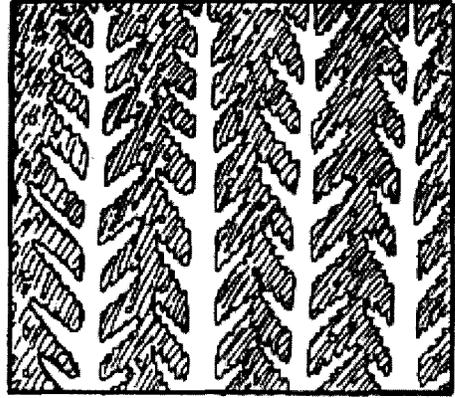


Fig. 6. Dendritic ice growth.

음 가지가 고형물에 의하여 단절될 경우에는 K_p 는 매우 낮아진다. 얼음 구조는 동결 속도와 동결 방향에 의하여 결정되는데, 급속 동결에 의하여 가지의 두께는 얇아지고 그 수는 증가한다. 완만 동결에서는 가지의 두께가 굵어지고 가지 수는 감소하여 잘 형성된 통로에 의하여 K_p 는 증가하지만, 피건조물의 기벽 두께도 역시 증가하기 때문에 2차 건조 구간에서 고형물내 수분의 탈습 건조가 어렵게 된다. 피건조물을 동결시킬 때 얼음 가지는 열전달 방향에 수직되게 성장하는데 만약 고형물이 방향성 결을 갖고 있는 경우에 열전달 방향과 결 방향이 평행일 때는 얼음 가지는 고형물의 결에 의하여 단절되어 K_p 는 감소하게 되는 것이다.

그 밖에 K_p 에 영향을 주는 요인으로 뒤에 다루게 될 붕괴 현상(collapse), 피건조물의 표피 유무 및 성질, 용액시료의 경우 동결시 농축액의 유출로 인한 표피 형성 등을 들 수 있으며, K_t 는 단열재 효과를 갖는 건조층의 수증기 농도 및 기공의 크기 등에 의하여 영향을 받는다. 만약 K_p 가 K_t 보다 상대적으로 감소하게 되면 공급열에 비하여 승화열이 감소하여 피건조물의 품온이 상승하게 된다. 피건조물의 온도 상승은 승화 조건을 유지하는데 악 영향을 미치게 되어 상변화가 증발의 형태로 바뀌게 되므로 피건조물의 품질이 떨어지게 된다.

붕괴현상(collapse)

피건조물의 동결과정에서 물은 얼음으로 분리되고 나머지 고형물은 비동결수와 함께 기벽을 형성한다. 만약 건조과정 중 수증기 배출 통로로 형성

된 기벽 물질이 붕괴하여 통로가 막히게 되면(Fig. 7) 수증기는 배출되지 못하고 계속 누적되어 압력이 증가한다. 결국 아무리 건조실의 진공도가 충분할지라도 실제 승화가 일어나는 경계면에서 압력은 증가하여 승화 조건이 깨지게 되어 증발 형태의 상변화가 일어난다. 이와 같은 붕괴는 기벽 물질의 물성에 의하여 결정되는데 유리질(glass state)인 경우와 결정질(crystal)의 경우로 구분할 수 있다.

유리질이란 동결시 비동결수와 고형물의 복합체가 결정을 형성하지 못하고 고화된 상태를 의미한다. 유리질로 바뀌는 온도를 유리전이온도(glass transition temperature)라 하는데 그 이상의 온도에서는 고무질(rubbery state)을 이루며 그 이하에서는 유리질로 존재한다. 유리질은 고무질에 비하여 유동성이 없기 때문에 진공동결건조에서는 승화 경계면의 온도를 유리전이온도 이하로 유지해야만 기벽의 붕괴 현상을 방지할 수 있다.

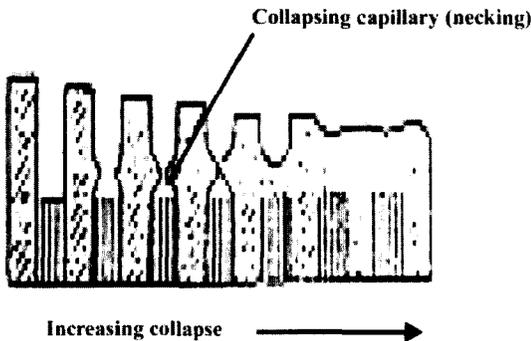


Fig. 7. Progress stages of collapse (left to right).

결정질이란 비동결수와 고형물의 복합체가 결정을 형성한 상태이다. 공용점(eutectic point)란 이와 같이 물과 고형물이 같이 결정을 이루게 되는 온도를 의미하여, 그 이상에서는 액상으로 존재하며, 그 이하에서는 결정질을 형성한다. 따라서 기벽 물질인 복합체의 붕괴 현상을 방지하기 위해서는 승화 경계면의 온도를 역시 공용점 이하로 유지해야 한다.

유리질을 이루는 고형물은 결정질에 비하여 분자 크기가 크다. 유리전이의 특징은 공용과 달리 상변화 에너지를 필요로 하지 않고 점도가 무한대로 증가하여 고화되는 것이다. Fig. 8은 동결 곡선인데 공용점이 U-V로 관찰되는 반면 유리전이온도는 나타나지 않는 특징을 갖는다. 진공동결건조에서 붕괴 온도라 함은 유리전이온도 또는 공용점이라 볼 수 있다. 붕괴 온도는 복합체의 수분함량에 따라 바뀌게 되는데 수분함량이 높을수록 붕괴 온도는 낮아진다(Fig. 9).

일반적인 식품의 경우 붕괴 온도가 Table 1에서와 같이 매우 낮기 때문에 고품질의 피건조물을 얻기 위해서는 승화 경계면의 온도가 붕괴 온도보다 낮도록 유지하는 것이 매우 중요하다.

승화 에너지 공급 방식

승화에 필요한 열에너지는 진공동결건조 장치에 따라 크게 복사 또는 전도의 열전달 형태로 공급된다. Fig. 10에서 ①은 피건조물의 하부로부터 복사, ②는 피건조물의 하부로부터 전도, ③은 상부의 복사와 하부의 전도, ④는 상하부로부터의 복사 방식을 나타내는데, 이때 피건조물은 입자형태의 집단

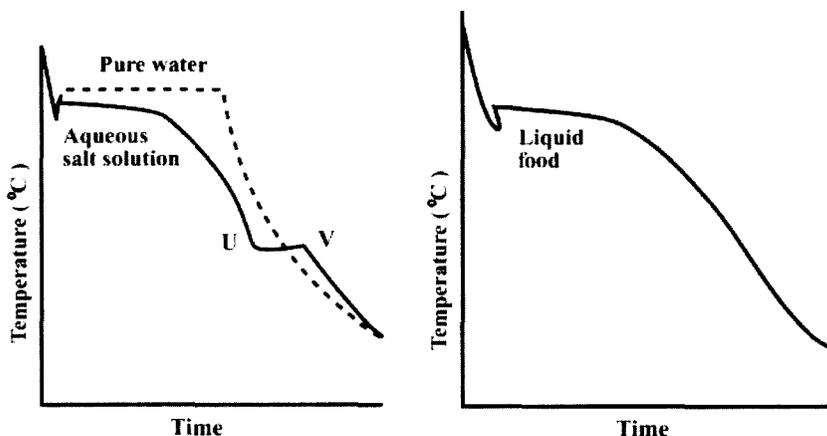


Fig. 8. Temperature vs. time curves for freezing. Left: eutectic freezing; right: glass transition.

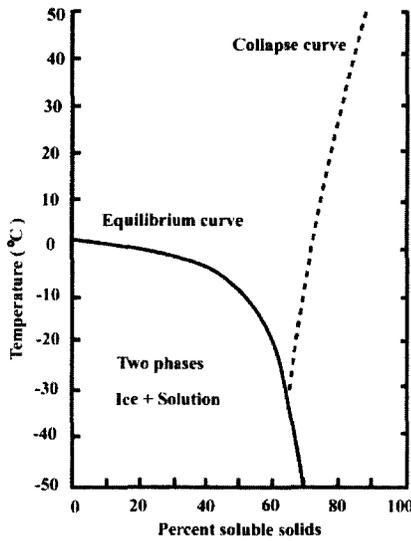


Fig. 9. Freezing phase diagram for a typical liquid food.

으로 가정하였다.

Fig. 11은 ③의 방식에서의 물질 및 열 전달을 나타내는데 건조가 진행되면서 오른쪽에서 왼쪽 그림의 양상으로 바뀌어 간다. 여기서 점선은 수증기압, 실선은 온도를 나타내며 오른쪽으로 갈수록 그 값이 증가함을 의미한다. 건조 과정에서 상하부에 건조층이 형성되며 하부의 수증기압은 일정하게 유지되면서 상부의 낮은 수증기압과의 차이에 의하여 수증기의 이동이 일어나며, 온도는 일반적으로 전도면에서 복사면보다 더 높게 유지되면서 열전달이 일어난다.

대체로 피건조물의 초기 수분함량(초기 함빙율)이 높을수록 최종건조시간은 증가하지만, 각 열전달 방식에 따라 그 양상이 다르게 나타난다(그림 10). ①, ④ 방식에서는 계속 증가하는데 비하여, ②, ③ 방식에서는 증가하다가 어느 적정 초기수분함량에서 감소하기 시작한다. 따라서 ②, ③ 방식을 사용할

Table 1. Collapse or maximum tolerable sublimation temperature

Collapse temperatures		Measured sublimation temperatures	
Product	(Ts) _{max} (°C)	Product	(Ts) _{max} (°C)
Potato	-1.5	Chicken	-21
Fructose	-48	Strawberry slice	-15
Glucose	-40	Shrimp	-18
Inositol	-27	Salmon steaks	-29
Sorbitol	-45	Beef	-14
Sucrose	-22 to -32	Whole egg	-17
Lactose	-19 to -31	Apple	-7
Raffinose	-26	Sour cream - fruit mixtures	-23
Dextran	-2 to -9	Ice milk	-30
Dextran 10 (MW≈10 ⁴)	-10	Rice	-33
Dextran 110 (MW≈1.1×10 ⁵)	-10.5	Peanut butter	-29
Ovalbumin	-10	Mushrooms	-17
Gelatin	-8	Carrots	-25
Orange juice	-24	Gelatin desserts	-13
Concord grape juice(sweetened)	-33.5	Asparagus	-40
Concord grape juice(unsweetened)	-46	Coffee	-23
Grapefruit juice	-30.5		
Lemon juice	-36.5		
Apple juice	-41.5		
Prune extract	-35		
Pineapple juice	-41.5		
Coffee extract	-20 to -26		
NaCl	-22		
1:1 Sodium citrate, citric acid	-40		
1:1 KH ₂ PO ₄ /NaH ₂ PO ₄	-80		

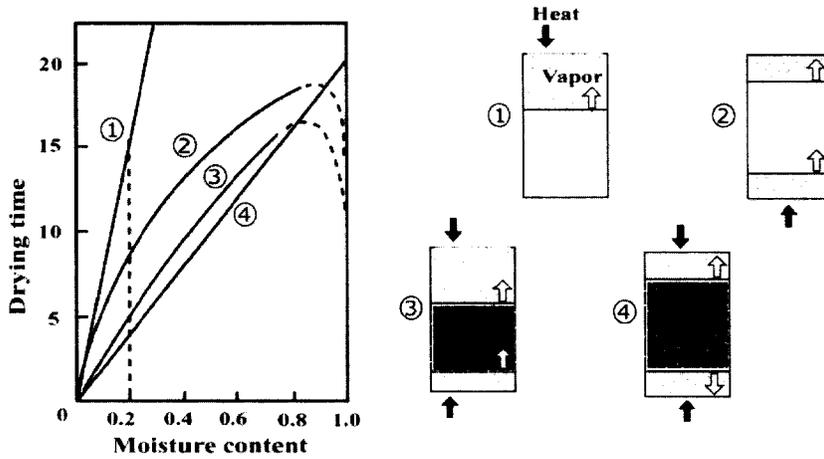


Fig. 10. Heating patterns and drying time required in vacuum freeze drying.

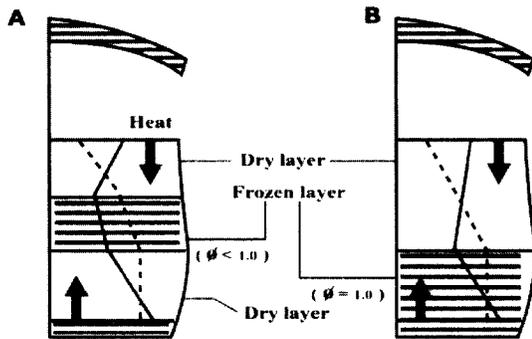


Fig. 11. Temperature and vapor pressure distribution in dry and frozen layers. Dot line: vapor pressure; filled line: temperature. ϕ : Moisture content.

경우 예를 들어 초기 수분함량이 대략 0.8인 피건조물이라면 물을 더 가하여 1.0 정도로 조절하여 건

조하면 오히려 수분이 더 많음에도 불구하고 최종 건조시간을 단축할 수 있다.

피건조물의 품질

진공동결건조에서는 승화가 유지되어야만 품질이 우수한 피건조물을 얻을 수 있다. 진공동결건조 피건조물의 특성은 외관이 건조후에도 유지되며, 내부에 세밀한 다공성 구조가 형성되며, 재수화시 복원성이 우수하며, 열에 의한 변성이 억제되며, 향기 성분이 보존된다는 점이다. 그런데 승화가 아닌 증발에 의한 건조가 발생할 경우에는 상기의 품질을 유지할 수 없게 된다.

품질 변화의 예로서 Fig. 12에서 건조가 잘된 당근의 기공(a)은 매우 미세한 반면, 상대적으로 그렇지 않은 경우(b, c)에는 기공이 크고 불균일하게 형

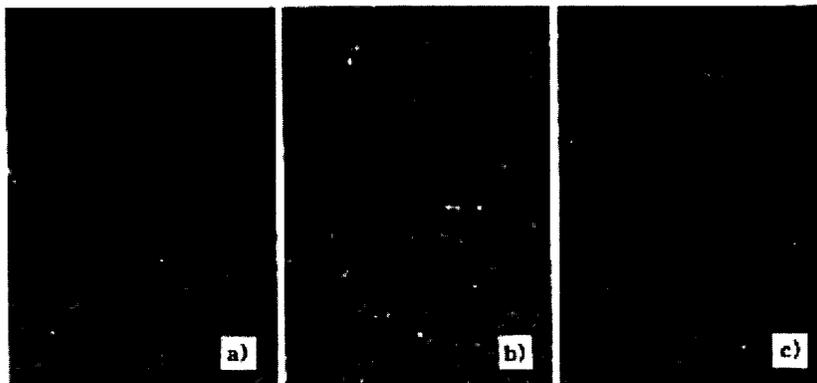


Fig. 12. Micro-structures of freeze dried carrot.

성됨을 알 수 있다. 그 밖에 향기성분의 경우 동결 속도가 완만하고 진공동결건조시 진공도가 낮고 가열판의 온도가 낮으면 그 손실이 작아지는 것으로 알려져 있다(Table 2).

Fig. 13은 식품을 진공동결건조시키고 압축하고 다시 재수화시키는 과정 중 식품의 무게 및 부피 변화에 관한 모식도인데 건조에 의하여 부피는 거의 원상태를 유지하며 단지 무게만 감량되며 재수화시 부피와 무게가 거의 건조전 원상태로 복원됨을 나타낸다. 여기서 피건조물을 압축시키는 이유는 최소의 크기로 유통하기 위함이다. Fig. 13에서 피건조물을 가습하고 압축하는 과정을 적절한 동결 건조의 조작으로 대처하여 공정을 단축시킬 수 있다.

진공동결건조기의 운전

고품질의 피건조물을 얻기 위해서는 예비 동결과

진공동결건조가 최적으로 운전되어야만 한다. 바람직한 운전 조건을 각 부분별로 나열하면 다음과 같다.

예비 동결과정에서는 품질의 목표에 따라 달라질 수 있다. 만약 건조 후 원래 상태의 부피 및 다공성 구조의 유지, 분말 제조의 경우 용해도 등이 그 대상이라면 급속동결하여 얼음 입자 크기를 작게 하고 균일한 분포를 형성해야 한다. 이와 상관없이 건조 속도를 높이기 위한 목적이라면 완만동결을 행하여 얼음 입자 크기를 크게 하여 건조 중 형성되는 수증기 배출 통로를 크게 할 수 있다. 단, 통로가 크게 되면 통로의 기벽 물질의 두께 역시 증가하므로 내재된 수분의 탈습 건조가 어렵게 되는 부작용에 유의해야 한다. 또한 섬유질과 같은 방향성 결을 갖는 경우 동결시 열전달 방향을 결의 수직방향으로 유지해야 얼음가지가 잘 성장하여 건조시 원활한 통로를 형성할 수 있다.

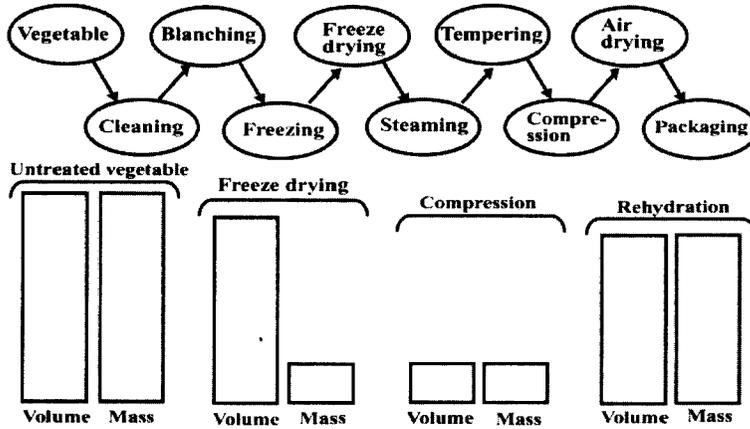


Fig. 13. Changes in volume and mass according to processing steps for the compressed freeze dried vegetable.

Table 2. Relative retention of coffee volatiles (based on total peak area) for various freezing and vacuum freeze drying conditions

	Relative retention (%)						
	Freeze drying chamber pressure (Torr)						
	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8
Freezing conditions							
Very slow, 15mm	92	96	78	77	66	67	34
Very slow, 5mm	72	77	65	61	53	67	35
Slow, 15mm	100	99	88	82	91	82	35
Slow, 5mm	87	85	83	81	88	86	65
Foam, slow, 15mm	67	61	49	53	57	44	63
Quick	47	53	38	38	44	35	36
Foam, quick	48	-	42	42	42	32	29

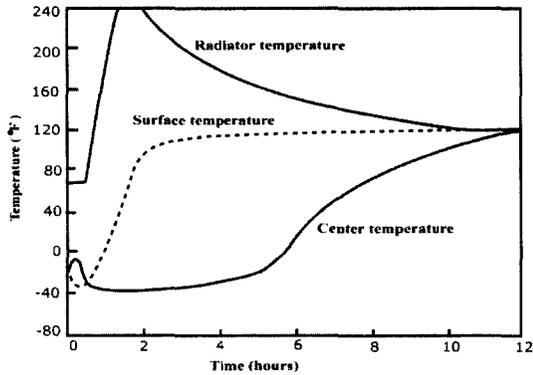


Fig. 14. Temperature vs. time of product for the vacuum freeze drying with radiation.

진공동결장치의 가열판은 피건조물의 온도를 조절하는 부분으로 운전 조건의 한가지 예로 Fig. 14를 들 수 있다. 이 경우 복사 열전달 방식으로 피건조물의 표면 온도는 일정하게, 중심 온도는 붕괴 온도보다 낮게 유지되도록 가열판 온도를 제어한다. 만약 공급열이 실제 승화에 쓰이는 열보다 많게 되면 피건조물의 온도가 상승하여 승화면의 온도가 붕괴 온도를 초과할 수 있기 때문에 매우 주의를 요하는 과정이라 할 수 있다. 1차 건조 구간이 종료되고 2차 건조 구간에 들어가면 피건조물 중심부의 온도가 상승하여 표면 온도와 일치하게 되는데 이때를 최종건조시간으로 간주한다.

진공펌프에 의한 진공도가 충분해야만 수증기압차에 의한 승화가 촉진되므로 가열판 조절에 앞서 먼저 만족되어야 하는 필수 조건이다. 건조실내 압력이 증가하면 승화가 감소하여 가열판으로부터 공급되는 과잉 열에 의하여 피건조물의 온도가 올라가므로 승화 조건 유지가 깨질 수 있다. 실험용 진공동결건조기는 하나의 펌프를 사용하나 생산용 건조기의 경우 최초 가동을 위한 hogging(roughing) 펌프와 건조 중 진공유지를 위한 holding 펌프(비응축성 기체 제거 등)를 사용한다.

응축기(냉동코일)의 역할 역시 매우 중요하다. 응축기의 온도는 건조실의 수증기압을 결정하므로 온도가 높게 되면 수증기압이 증가하여 승화에 의한 수증기 물질 전달이 감소되므로 충분히 낮은 온도로 유지되어야 한다. 또한 피건조물로부터 생성된 건조실의 수증기를 급속히 응축기 표면에 얼게 하여 포집해야 하며, 포집된 얼음 층에 의한 열 저항 인자를 배제하기 위하여 계속 증가하는 얼음을 효

과적으로 제거해야 한다.

산업계에서 일부 사용되고 있는 연속식 진공동결 건조 장치는 진공을 유지하면서 피건조물의 온도를 조절할 수 있도록 특수하게 제작된 여러 단계의 구역(zone)으로 구성되어 있고 국내에서는 인스탄트 커피 제조 등에 사용되고 있다.

진공동결건조 장치의 자동화는 오래 전부터 이루어져 왔는데 일반적으로 가열판 온도, 응축기 온도, 진공도의 설정점(set point)에 대한 피드백(feed-back) 제어 형태로 구축되었다. 현재 국내에서 붕괴 현상을 방지하면서 건조 시간을 단축할 수 있는 인공지능형 자동제어 시스템이 개발되었다.

동결건조의 신기술

현재 산업체에서 가장 많이 적용되고 있는 진공동결건조 기술의 몇 가지 취약점을 보완하기 위하여 새로운 기술이 개발되어 왔다. 즉, 열에너지의 효과적인 전달, 진공유지 배치(batch) 내에서의 제습, 건조시간의 단축 등의 과제를 해결하기 위하여 마이크로웨이브(microwave) 진공동결건조, 유동층(fluidized bed) 상압동결건조, 분무 진공동결건조 등의 기술이 제안되었다.

마이크로웨이브를 열원으로 사용하여 건조 중 형성되는 건조 층을 통한 열전달의 장애를 극복하였다. 즉, 마이크로웨이브가 직접 승화경계면에 공급되어 승화에너지의 공급이 효과적으로 일어나 건조 시간을 획기적으로 줄일 수 있다. 그러나 이 기술의 큰 장애는 피건조물의 온도가 그 형상 및 양에 따라 변화가 심한 점이다. 따라서 건조 물성의 중요한 요인인 붕괴온도의 조절이 거의 불가능하여 아직 실용화되고 있지 않은 실정이다.

유동층 상압동결건조는 상압 하에서 매우 강력한 탈습제와 입상 피건조물을 같이 혼합하여 초저온 건조 공기를 접촉시켜서 승화와 탈습이 일어난다. 이 방법은 연속식 공정이 가능하며, 상압에서 행하므로 장기간의 건조시간이 소요되지만 공정이 매우 간단하고 가동 비용이 매우 저렴하여 매우 경제적인 기술로 판단된다. 그러나 직접 탈습제와 혼합되어야 하며 또한 건조 종료 후 그 분리가 가능해야 하는 제약점을 갖는다.

분무 진공동결건조는 진공하에서 미립자를 분무시켜 자연 동결시키고 승화 및 탈습이 일으키는 기술이다. 이 기술에 의하여 미립자의 입도 분포 조

절, 건조시간의 단축, 미립자의 다공성 등의 면에서 우수한 품질의 피건조물을 제조할 수 있으므로 미래의 기술로 간주된다. 아직 국제적으로 상용화의 여부가 미지에 가려 있으며 국내에서는 산업자원부 지원의 민군과제가 진행 중이다.

결 론

진공동결건조와 다른 건조법과의 차이점은 피건조물의 품질에 독특한 특징과 함께 상대적으로 큰 에너지 소모량이라 할 수 있다. 따라서 적용 대상을 정할 때 피건조물의 고품질에 대한 요구가 에너지 소모의 단점을 능가할 때만이 가능하다. 식품산업계의 경우 가장 대표적인 적용 대상으로 인스탄트 커피를 들 수 있고, 그 밖에 건조 야채, 인스탄트 차류, 천연향료 및 향신료, 가공육류 및 수산물 등에 성공적으로 적용되고 있다. 앞으로 그 적용 대상의 확산과 더불어 더 효율적인 기술이 개발되어야 한다.

진공동결건조 장치의 효과적인 운전은 타 건조 장치에 비하여 상대적으로 어려운 것으로 알려져 있다. 최적의 운전 조건을 설정하기 위해서는 건조 메카니즘에 의한 공정변수간의 상관관계, 피건조물 상변화에 관련된 물성 등을 이해하는 것이 선행 조건이다. 따라서 원리적 해석에 접근하여 체계적으로 운전 조건을 발전시켜 나간다면 고품질의 제품을 절감된 에너지로 생산할 수 있는 시스템의 개발이 현실화될 수 있을 것으로 기대된다.

승화란 반드시 진공에서만 일어나는 것이 아니다. 진공동결건조가 현재 산업계에서 근간을 이루고 있을지라도 상압하의 동결건조 기술을 계속적으로 발전시켜야 가장 고질적 문제인 연속식 공정의 실용화가 가능해 질 것이다. 또한 마이크로웨이브와 같은 새로운 에너지 절약형 열원의 계속적인 도입과 그에 따른 여러 가지 제반 문제의 해결이 뒤 따를 때 비로서 21세기 식품 산업계의 주요 기술로 자리 잡을 수 있을 것으로 예상된다.

참고문헌

강준영. 2004. 의약품 진공동결건조기의 자동제어. 동국대학교 박사학위논문
 남재홍, 이승주. 2004. 동결건조기의 에너지절약형 선반 온도제어 시스템의 개발. *산업식품공학* **8**(1): 25-29
 문준웅. 1987. 냉동건조기술의 발전과 식품산업에의 이

용현황. *식품과학* **20**(2): 38-43
 박노현, 김병삼, 배신철. 1993. 당근의 동결건조에서 승화건조시간 예측연구. *한국식품과학회지* **25**(4): 313-320
 이병상, 이승주. 1997. 식품동결건조기의 자동제어. *산업식품공학* **1**(3): 240-246
 Ang, T.K., J.D. Ford and D.C.T. Pei. 1977. Microwave freeze-drying of food: A theoretical investigation. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **20**(5): 517-526
 Ang, T.K., D.C.T. Pei and J.D. Ford. 1977. Microwave freeze drying: An experimental investigation. *Chemical Engineering Science* **32**(12): 1477-1489
 Boeh-Ocansey, O. 1988. Freeze-drying in a fluidized-bed atmospheric dryer and in a vacuum dryer: Evaluation of external transfer coefficients. *Journal of Food Engineering* **7**(2): 127-146
 Boeh-Ocansey, O. 1985. Some factors influencing the freeze drying of carrot discs in vacuo and at atmospheric pressure. *Journal of Food Engineering* **4**(3): 229-243
 Chen, W., K.L.B. Gast and S. Smithey. 2000. The effects of different freeze-drying processes on the moisture content, color, and physical strength of roses and carnations. *Scientia Horticulturae* **84**(3-4): 321-332
 Cordero, B. and D. Voltolina. 1997. Viability of mass algal cultures preserved by freezing and freeze-drying. *Aquacultural Engineering* **16**(4): 205-211
 Farid, M. 2002. The moving boundary problems from melting and freezing to drying and frying of food. *Chemical Engineering and Processing* **41**(1): 1-10
 Ferguson, W.J. and R.W.L. Tomosy. 1993. A finite element analysis of freeze-drying of a coffee sample. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* **108**(3-4): 341-352
 Franks, F. 1998. Freeze-drying of bioproducts: putting principles into practice. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* **45**(3): 221-229
 Genin, N. and F. Rene. 1997. Influence of freezing rate and the ripeness state of fresh courgette on the quality of freeze-dried products and freeze-drying time. *Journal of Food Engineering* **29**(2): 201-209
 Genin, N., F. Rene and G. Corrieu. 1996. A method for on-line determination of residual water content and sublimation end-point during freeze-drying. *Chemical Engineering and Processing* **35**(4): 255-263
 George, J.P. and A.K. Datta. 2002. Development and validation of heat and mass transfer models for freeze-drying of vegetable slices. *Journal of Food Engineering* **52**(1): 89-93
 Greenfield, P.F. 1974. Cyclic-pressure freeze drying. *Chemical Engineering Science* **29**(10): 2115-2123
 Hammami, C. and F. Rene. 1997. Determination of freeze-drying process variables for strawberries. *Journal of Food Engineering* **32**(2): 133-154
 Heinzelmann, K. and K. Franke. 1999. Using freezing and

- drying techniques of emulsions for the microencapsulation of fish oil to improve oxidation stability. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* **12**(3-6): 223-229
- Kochs, M., C. Korber, B. Nunner and I. Heschel. 1991. The influence of the freezing process on vapour transport during sublimation in vacuum-freeze-drying. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **34**(9): 2395-2408
- Kostaropoulos, A.E. and G.D. Saravacos. 1997. Thermal diffusivity of granular and porous foods at low moisture content. *Journal of Food Engineering* **33**(1-2): 101-109
- Krokida, M.K., V.T. Karathanos and Z.B. Maroulis. 1998. Effect of freeze-drying conditions on shrinkage and porosity of dehydrated agricultural products. *Journal of Food Engineering* **35**(4): 369-380
- Kuu, W.-Y., J. McShane and J. Wong. 1995. Determination of mass transfer coefficients during freeze drying using modeling and parameter estimation techniques. *International Journal of Pharmaceutics* **124**(2): 241-252
- Liapis, A.I. and Marchello, J.M. Freeze drying of a frozen liquid in a phial. *Drying Technology* **2**(2): 203-217 (1983)
- Liapis, A.I. and R. Bruttini. 1994. A theory for the primary and secondary drying stages of the freeze-drying of pharmaceutical crystalline and amorphous solutes: comparison between experimental data and theory. *Separations Technology* **4**(3): 144-155
- Lin, Y.-P., J.-H. Tsen and V.A. King. 2004. Effects of far-infrared radiation on the freeze-drying of sweet potato. *Journal of Food Engineering* 20 July In Press
- Lin, T.M., T.D. Durance and C.H. Scaman. 1998. Characterization of vacuum microwave, air and freeze dried carrot slices. *Food Research International* **31**(2): 111-117
- Lin, S. 1995. Thermal control of freeze-drying processes in a porous medium with predetermined rate of drying. *International Journal of Refrigeration* **18**(3): 161-167
- Litchfield, R.J. and A.I. Liapis. 1982. Optimal control of a freeze Dryer-II : Dynamic analysis. *Chemical Engineering Science* **37**(1): 45-55
- Litchfield, R.J., F.A. Farhadpour and A.I. Liapis. 1981. Cyclical pressure freeze drying. *Chemical Engineering Science* **36**(7): 1233-1238
- Litvin, S., C.H. Mannheim and J. Miltz. 1998. Dehydration of carrots by a combination of freeze drying, microwave heating and air or vacuum drying. *Journal of Food Engineering* **36**(1): 103-111
- Lombrana, J.I. and J.M. Diaz. 1987. Coupled vacuum and heating power control for freeze-drying time reduction of solutions in phials. *Vacuum* **37**(5-6): 473-476
- Malpas, E.W. 1967. The sterilization of freeze-drying equipment. *Vacuum* **17**(12): 639-645
- Mascarenhas, W.J., H.U. Akay and M.J. Pikal. 1997. A computational model for finite element analysis of the freeze-drying process. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* **148**(1-2): 105-124
- Matteo, P.D., G. Dons and G. Ferrari. 2003. The role of heat and mass transfer phenomena in atmospheric freeze-drying of foods in a fluidised bed. *Journal of Food Engineering* **59**(2-3): 267-275
- Mumenthaler, M. and H. Leuenberger. 1991. Atmospheric spray-freeze drying: a suitable alternative in freeze-drying technology. *International Journal of Pharmaceutics* **72**(2): 97-110
- Pikal, M.J. and S. Shah. 1990. The collapse temperature in freeze drying: Dependence on measurement methodology and rate of water removal from the glassy phase. *International Journal of Pharmaceutics* **62**(2-3): 165-186
- Pikal, M.J., S. Shah, M.L. Roy and R. Putman. 1990. The secondary drying stage of freeze drying: drying kinetics as a function of temperature and chamber pressure. *International Journal of Pharmaceutics* **60**(3): 203-207
- Rene, F. and E.W. Rodolphe. 1993. Vacuum freeze-drying of a liquid in a vial: determination of heat and mass-transfer coefficients and optimisation of operating pressure. *Chemical Engineering and Processing* **32**(4): 245-251
- Schoen, M.P., B.K. Braxton, L.A. Gatlin and R.P. Jefferis, III. 1995. A simulation model for the primary drying phase of the freeze-drying cycle. *International Journal of Pharmaceutics* **114**(2): 159-170
- Smith, M.C. and M. Farid. 2004. A single correlation for the prediction of dehydration time in drying and frying of samples having different geometry and size. *Journal of Food Engineering* **63**(3): 265-271
- Song, C.S., J.H. Nam, C.-J. Kim and S.T. Ro. 2004. Temperature distribution in a vial during freeze-drying of skim milk. *Journal of Food Engineering* 16 July In Press
- Tsinontides, S.C., P. Rajniak, D. Pham, W.A. Hunke, J. Placek and S.D. Reynolds. 2004. Freeze drying-principles and practice for successful scale-up to manufacturing. *International Journal of Pharmaceutics* **280**(1-2): 1-16
- Wang, Z.H. and M.H. Shi. 1998. Numerical study on sublimation-condensation phenomena during microwave freeze drying. *Chemical Engineering Science* **53**(18): 3189-3197
- Wolff, E. and H.G. Rodolphe. 1989. Vacuum freeze-drying kinetics and modelling of a liquid in a vial. *Chemical Engineering and Processing* **25**(3): 153-158
- Wu, H., Z. Tao, G. Chen, H. Deng, G. Xu and S. Ding. 2004. Conjugate heat and mass transfer process within porous media with dielectric cores in microwave freeze drying. *Chemical Engineering Science* **59**(14): 2921-2928
- Zhai, S., R. Taylor, R. Sanches and N.K.H. Slater. 2003. Measurement of lyophilisation primary drying rates by freeze-drying microscopy. *Chemical Engineering Science* **58**(11): 2313-2323